



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH  
DES LANDES NORDRHEIN-WESTFALEN - E.V.

Institut für Chemische Technologie

Radiometrische Isotopenhäufigkeitsanalyse  
von  $^{233}\text{U}$ - $^{235}\text{U}$ -Gemischen

von

E. Merz

Jül - 498 - CT

Mai 1967

Als Manuskript gedruckt

**Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 498**

Institut für Chemische Technologie – Jül 498 – CT

Dok.: Burnup - Radiometric Determination  
Uranium Isotopes - Abundance Analysis  
Reactor Fuels - Burnup Analysis

DK: 621.039.516.22 : 543.52  
546.791 : 621.039.516.22  
621.039.54 : 621.039.516.22

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich,  
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

## Radiometrische Isotopenhäufigkeitsanalyse von $^{233}\text{U}$ - $^{235}\text{U}$ -Gemischen\*

E. MERZ

Arbeitsgruppe „Institut für Chemische Technologie“ der Kernforschungsanlage Jülich

Eingegangen am 26. Oktober 1966

**Zusammenfassung.** Es wird ein radiometrisches Abbrand-Analysenverfahren beschrieben, das eine zuverlässige Isotopenhäufigkeitsbestimmung von  $^{233}\text{U}$ - $^{235}\text{U}$ -Gemischen gestattet. Man mißt dazu das in der zu analysierenden Uranprobe durch thermische Kernspaltung induzierte Radioaktivitätsverhältnis zweier Spaltnuklide, deren Spaltausbeuten wesentlich verschieden für die beiden Uranisotope sind. Durch Vergleich mit reinen  $^{233}\text{U}$ - und  $^{235}\text{U}$ -Standards, die unter identischen Bedingungen mitbestrahlt werden, läßt sich der unbekannte Gehalt an  $^{233}\text{U}$  bzw.  $^{235}\text{U}$  in der Analysenprobe ermitteln. Zwei Spaltausbeute-Verhältnisse, nämlich das von  $^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$  und  $^{103}\text{Ru}/^{131}\text{J}$  eignen sich besonders gut für diesen Zweck. Außerdem läßt sich in den Uranproben gleichzeitig der Gehalt an  $^{238}\text{U}$  über die Messung der  $(n, \gamma)$ -induzierten  $^{239}\text{Np}$ -Aktivität ermitteln.

**Summary.** A radiometric burnup measurement procedure is described, which allows a reliable isotopic abundance analysis of  $^{233}\text{U}$ - $^{235}\text{U}$ -mixtures. Measuring the thermal neutron induced radioactivity ratios of two different fission product nuclides which show considerable differences in fission yields for the two uranium isotopes and comparing them with pure  $^{233}\text{U}$ - and  $^{235}\text{U}$ -standards irradiated under identical conditions, the unknown content of  $^{233}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  in the sample may be evaluated. Two different fission yield ratios are applicable for this purpose, namely  $^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$  and  $^{103}\text{Ru}/^{131}\text{J}$ . In addition the amount of  $^{238}\text{U}$  present in the samples can be determined by activation analysis of the  $(n, \gamma)$ -induced  $^{239}\text{Np}$  activity.

Die genaue Kenntnis der Isotopenzusammensetzung von Uran-Kernbrennstoffen ist in der Reaktortechnik aus ökonomischen und rein wissenschaftlichen Gründen von großer Bedeutung [1]. Das besondere Interesse gilt dabei dem Gehalt an spaltbaren Uran-Isotopen. Zu deren Bestimmung sind eine Reihe von guten Verfahren bekannt, wobei an erster Stelle die massenspektrometrische Analyse zu nennen ist. Sie ist am vielseitigsten anwendbar und liefert auch die genauesten Resultate [2]. In der Praxis bedeutungsvoll sind daneben noch radiochemische Methoden, insbesondere die Aktivierungsanalyse [3]. Gegenwärtig werden etwa 80 % der Abbrandanalysen auf diesem Wege durchgeführt. Die Massenspektrometrie umfaßt ca. 15 %, und der Rest entfällt auf die sonstigen noch möglichen Verfahren. Die Messung der durch thermische Neutronen induzierten Spalt- bzw. Aktivierungsprodukte ermöglicht eine Analysengenauigkeit bis auf Werte um 2 % [4].

Die Bestimmung des Abbrandes von Uran-Kernbrennstoffen über die quantitative Analyse eines speziellen Spaltnuklids, wie beispielsweise  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ , etc., ist ein heute in der Kerntechnologie wohlbekanntes und bewährtes Verfahren. Diese Methode versagt allerdings dann, wenn die zwei spaltbaren Uranisotope  $^{233}\text{U}$  und  $^{235}\text{U}$  nebeneinander vorliegen, wie es bei Einzonen-Thoriumbrutreaktoren geschehen kann. Da ihre Gehaltsbestimmung jeweils über die Messung der Spaltereignisse geschieht, beide Uranisotope, das  $^{233}\text{U}$  und das  $^{235}\text{U}$ , aber durch thermische Neutronen Kernspaltung erleiden, ist eine Isotopenhäufigkeitsanalyse beider Isotope nebeneinander nicht mehr ohne weiteres möglich. Zwar gelingt in einem solchen Falle eine Isotopenhäufigkeitsmessung auf massenspektrometrischem Wege, trotzdem sucht man nach einer einfacheren und billigeren Analysenmethode.

Wir haben aus diesem Grunde ein radiometrisches Verfahren entwickelt, das eine zuverlässige Isotopenhäufigkeitsanalyse von  $^{233}\text{U}$ - $^{235}\text{U}$ -Gemischen gestattet. Man mißt dazu in einer unbekannten Uranprobe

das neutroneninduzierte Radioaktivitätsverhältnis von zwei Spaltnukliden, deren Spaltausbeuten wesentlich verschieden für die zwei Uranisotope sind. Durch Vergleich mit reinen  $^{233}\text{U}$ - und  $^{235}\text{U}$ -Standards, die unter identischen Bedingungen bestrahlt werden, läßt sich der unbekannte Gehalt an  $^{233}\text{U}$  bzw.  $^{235}\text{U}$  in der Analysenprobe ermitteln. Zwei Spaltausbeute-Verhältnisse, nämlich das von  $^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$  und  $^{103}\text{Ru}/^{131}\text{J}$ , eignen sich besonders gut für diesen Zweck. Außerdem läßt sich in den Uranproben gleichzeitig der Gehalt an  $^{238}\text{U}$  über die Messung der  $(n, \gamma)$ -induzierten  $^{239}\text{Np}$ -Aktivität ermitteln. Die auf diesem Wege erzielten Resultate zeigen eine zufriedenstellende Genauigkeit.

### Bestimmung des $^{238}\text{U}$ -Gehaltes

Der aktivierungsanalytische Nachweis von  $^{238}\text{U}$  gelingt sehr empfindlich über die Messung des aus dem primären  $(n, \gamma)$ -Aktivierungsprodukt entstehenden Zerfallsprodukt  $^{239}\text{Np}$ , ein  $\beta$ - $\gamma$ -Strahler von 2,3 Tagen Halbwertszeit. Die quantitative Isotopen-Häufigkeitsanalyse auf  $^{238}\text{U}$  kann gleichzeitig in derselben Uran-Analysenprobe vorgenommen werden, in der auch die Bestimmung des  $^{233}\text{U}$ - $^{235}\text{U}$ -Gehaltes erfolgen soll. Als Standardproben verwendet man zweckmäßigerweise Uranproben mit einem ähnlichen  $^{238}\text{U}$ -Gehalt, wie man ihn ungefähr in den zu analysierenden Substanzen erwartet.

### Versuchsbeschreibung und Ergebnisse

Am einfachsten gestaltet sich der aktivierungsanalytische Nachweis des  $^{238}\text{U}$  über die zerstörungsfreie Analyse der gebildeten  $^{239}\text{Np}$ - $\gamma$ -Radioaktivität. BOBLETER und MUSYL haben gezeigt, daß dieses Verfahren auch bei Anwesenheit von Spaltprodukten zufriedenstellende Ergebnisse liefert [5]. Enthalten die zu untersuchenden Proben jedoch einen hohen Betrag an spaltbaren U-Isotopen, so fällt eine Störung der mitgebildeten Spaltproduktaktivitäten ins Gewicht. Eine wenigstens teilweise Dekontamination des  $^{239}\text{Np}$  ist deshalb unumgänglich. Wir haben zu diesem Zweck zunächst das von SCHNEIDER ausgearbeitete Verfahren der extraktiven Abtrennung und Reinigung des Neptuniums mit Tri-iso-octylamin und Thenoyltrifluoraceton angewandt [6]. Die Methode erwies sich jedoch als sehr zeitraubend und gab auch nur relativ schlecht

\* Die vorstehende Arbeit ist entstanden im Rahmen des THTR-Assoziationsvertrages zwischen EURATOM — Brown Boveri/Krupp Reaktorbau GmbH — Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e. V.

Vorgetragen anlässlich des Symposiums „Reaktorchemie“, veranstaltet von der Fachgruppe „Kern-, Radio- und Strahlenchemie“ der GdCh, Jülich, 3.—4. Oktober 1966.

reproduzierbare Werte. Wir fanden schließlich, daß eine einmalige Abtrennung des  $^{239}\text{Np}$  von den übrigen bei einer Neutronenaktivierung mitgebildeten Radionukliden an dem Anionenaustauscher Dowex-1 für eine fehlerfreie Analyse ausreichend ist. Aus stark salpetersaurem Medium werden neben Neptunium nur ganz wenige Spaltnuklide und Uran an Dowex-1 festgehalten, während alle übrigen die Austauschersäule ohne Adsorption passieren [7]. Neptunium kann anschließend durch Elution mit  $\text{H}_2\text{O}$  quantitativ in nahezu radiochemisch reiner Form erhalten werden.

Uranylнитrat-Lösungen bekannter Konzentration und Isotopenzusammensetzung (je ca. 200  $\mu\text{g U}$ ) wurden 8 Std lang in der thermischen Säule des Reaktors FRJ-1 bei einem Fluß von  $1 \times 10^{10} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  be-

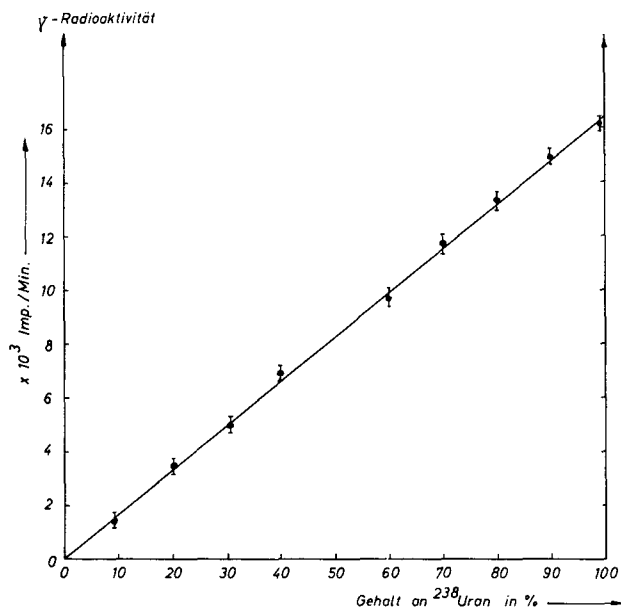


Abb. 1. Radiometrische Bestimmung des  $^{238}\text{U}$ -Gehaltes in einer Uranprobe über die Messung der 106 keV- $\gamma$ -Strahlung des  $^{239}\text{Np}$

strahlt. Nach einer Abklingzeit von ca. 4 Std wurden die Proben auf eine mit 10 n-HNO<sub>3</sub> vorbehandelte Anionenaustauschersäule (Dowex-1, 10 cm lang,  $\varnothing$  6 mm) aufgegeben und mit 20 ml 10 n-HNO<sub>3</sub> gewaschen. Das Eluat, das fast die gesamten Spaltprodukte enthielt, wurde verworfen. Anschließend wurde das Np mit 10 ml H<sub>2</sub>O eluiert und in einem Glasschälchen eingedampft, das direkt zur gammaspektrometrischen Messung verwendet wurde. Als Meßgerät diente ein 2"  $\times$  2" NaJ(Tl)-Kristall in Verbindung mit einem Victoreen 400-Kanal-Impulshöhenanalysator. Zur Bestimmung des  $^{239}\text{Np}$ -Gehaltes wurde der 106 keV-Photopeak des  $^{239}\text{Np}$  herangezogen. Die Ergebnisse der Analyse einer Reihe von Uranproben mit verschiedenem  $^{238}\text{U}$ -Gehalt sind in Abb. 1 dargestellt. Die angegebenen Werte sind Mittelwerte aus Mehrfachmessungen. Die Fehlerbreite wird durch die senkrechten Begrenzungsstriche bei den einzelnen Meßpunkten ausgedrückt.

#### Bestimmung des $^{233}\text{U}$ - $^{235}\text{U}$ -Gehaltes

Vergleicht man die Spaltausbeutekurve für Uran-235 mit derjenigen des Uran-233, so fällt auf, daß die Kurven bis auf gewisse Abweichungen an den Flanken der Peaks einen nahezu identischen Verlauf zeigen. Man kann jedoch gerade diese für einige wenige Nuklide

relativ großen Unterschiede in den Spaltausbeuten zu einer Häufigkeitsanalyse der beiden genannten Uranisotope ausnutzen. Wenn man ein Nuklidpaar heranzieht, bei dem für das eine die Spaltausbeute für  $^{235}\text{U}$  höher liegt als für  $^{233}\text{U}$  und für das andere umgekehrt, so zeigt das entsprechende Spaltausbeuteverhältnis eine besonders starke Variation in Abhängigkeit von der Isotopenzusammensetzung.

Es ist bekannt, daß alle aktivierungsanalytischen Uranbestimmungen, die auf dem Phänomen der Kernspaltung eines Uranisotopes basieren, mit der Problematik der Abhängigkeit der Spaltausbeuten für die einzelnen Radioelemente von der Neutronenenergie behaftet sind [8]. Nicht nur, daß die Massenverteilungskurve verschiedener spaltbarer Kerne im thermischen Bereich und für schnelle Neutronen erhebliche Unterschiede aufweist, man erhält bei Anwesenheit von schnellen Neutronen auch eine Spaltung beispielsweise an  $^{238}\text{U}$ , und diese führt weitgehend zu den gleichen Spaltnukliden wie die thermische Uranspaltung. Die starke Abhängigkeit von der Neutronenenergie in der Massenverteilungskurve macht sich hauptsächlich bei der symmetrischen Spaltung bemerkbar. Außerdem kommen noch die Schwankungen aus Resonanzbereichen hinzu [9]. Bei der radiometrischen Isotopenhäufigkeitsanalyse lassen sich Fehler durch diese Effekte leicht vermeiden, wenn man die Neutronenaktivierungen unter Ausschluß schneller Neutronen durchführt und außerdem durch die Mitbestrahlung von Standardproben unter identischen Bedingungen die noch verbleibenden Abweichmöglichkeiten ausschaltet.

Übrigens hat sich in einer Untersuchung von BALCARCZYK et al. [10] gezeigt, daß z.B. die Spaltausbeuten für das von uns zur Messung verwendete  $^{103}\text{Ru}$  für die thermische und epithermische Spaltung genau gleich sind.

Wir haben die drei Nuklide  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  und  $^{131}\text{J}$  als die für unser Verfahren bezüglich ihrer unterschiedlichen Spaltausbeuten, Halbwertszeit und chemischer Eigenschaften am besten geeignete Vertreter befunden. Die genaue Kenntnis der absoluten Spaltausbeuten für die zur Isotopenhäufigkeitsanalyse verwendeten Spaltnuklide ist nicht erforderlich, da ja jeweils reine Standardproben von  $^{233}\text{U}$  und  $^{235}\text{U}$  mitbestrahlt werden.

Nach den aus der Literatur verfügbaren Angaben besitzen die beiden Uranisotope folgende kumulative Spaltausbeuten:

Tabelle 1. Kumulative Spaltausbeute in Prozent für

Nuklid	$^{233}\text{U}$	$^{235}\text{U}$
$^{89}\text{Sr}$	6,3 [11] 6,5 [12]	4,79 [13] 4,73 [15]
$^{103}\text{Ru}$	1,4 [10] 1,6 [12]	2,79 [13] 3,0 [13]
$^{131}\text{J}$	2,9 [13] 2,84 [14]	3,1 [13] 2,4 *
		Isobarenausbeute für Xe 2,9 [12]

\* Geschätzt aus eigenen Messungen.

#### Versuchsbeschreibung und Ergebnisse

Die Neutronenbestrahlungen wurden in der thermischen Säule des Reaktors FRJ-1 bei einem Fluß von  $1 \times 10^{10} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  durchgeführt. Zur Bestrahlung gelangten jeweils in Quarzampullen oder Polyäthylenbehältern eingeschlossene Uranylнитratlösungen bekannter U-Konzentration und Isotopenzusam-

Tabelle 2. Gemessene Zählraten und Radioaktivitätsverhältnisse der Spaltnuklide  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  und  $^{131}\text{J}$  für Uranproben verschiedener  $^{233}\text{U}$ - $^{235}\text{U}$ -Zusammensetzung

Isotopenzusammensetzung der Uranproben	Radioaktivität in Imp./min (bezogen auf Bestrahlungsende)			Verhältnis	
	$^{89}\text{Sr}$	$^{103}\text{Ru}$	$^{131}\text{J}$	$^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$	$^{103}\text{Ru}/^{131}\text{J}$
100 % $^{235}\text{U}$ - 0 % $^{233}\text{U}$	106500	63300	70400	0,595	0,900
95 % $^{235}\text{U}$ - 5 % $^{233}\text{U}$	109000	62900	72000	0,578	0,874
72 % $^{235}\text{U}$ - 28 % $^{233}\text{U}$	124700	60900	76800	0,489	0,793
48 % $^{235}\text{U}$ - 52 % $^{233}\text{U}$	139500	55800	81500	0,401	0,683
24 % $^{235}\text{U}$ - 76 % $^{233}\text{U}$	157200	49700	86200	0,316	0,576
0 % $^{235}\text{U}$ -100 % $^{233}\text{U}$	175700	42100	89600	0,240	0,470

mensetzung. Als Standardproben dienten auf 90 % angereichertes  $^{235}\text{U}$  und reines  $^{233}\text{U}$ . Die Bestrahlungsdauer betrug 24 Std.

Nach einer Abklingzeit von mehreren Tagen wurden die bestrahlten Uranylinitratproben mit genau bekannten Trägersmengen der Elemente Sr, Ba, Ru und J und außerdem noch mit geringen Mengen Rückhalteträger der wichtigsten anderen Spaltprodukte versetzt. Die Lösungen wurden auf ein bestimmtes Volumen aufgefüllt, wovon dann zu den einzelnen Bestimmungen jeweils aliquote Teile abgenommen werden konnten. Um Adsorptionseffekte der Spaltnuklide an den Gefäßwänden auszuschalten, ist es unerlässlich, die Lösungen stark sauer zu halten und außerdem geringe Mengen Träger der wichtigsten Spaltprodukte zuzusetzen.

#### Strontium-Bestimmung

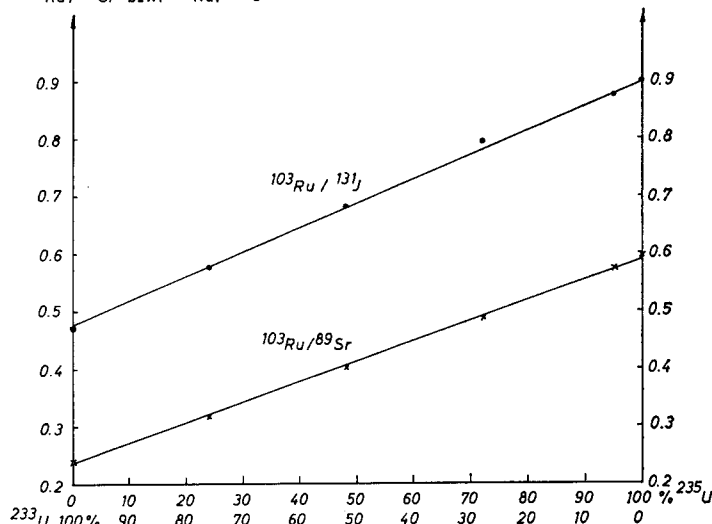
Zur radiochemischen Strontium-Analyse wurde ein Aliquot der bestrahlten Uranylinitrat-Lösung abgenommen. Die Abtrennung des Strontiums erfolgte zunächst gemeinsam mit dem Barium durch Fällung als Nitrate aus rauchender Salpetersäure. Die Ba-Sr-Trennung wurde über die Ausfällung des Bariums als  $\text{BaCrO}_4$  vorgenommen. Nach einigen weiteren Zwischenstufen wurde das Strontium schließlich als  $\text{SrCO}_3$  ausgefällt, als welches es auch zur Radioaktivitätsmessung mit dem  $\beta$ -Proportionalzähler gelangte. Die chemische Ausbeutebestimmung wurde auf gravimetrischem Wege durchgeführt. Die Einzelheiten dieser klassischen radiochemischen Ba-Sr-Bestimmung sind in der Literatur beschrieben [16].

#### Jod-Bestimmung

Die Jodabtrennung und Bestimmung erfolgte nach der weitverbreiteten und bewährten Methode der Extraktion des elementaren Jods mit Tetrachlorkohlenstoff mit anschließender Fällung als  $\text{AgJ}$ . Dieser Niederschlag wurde zur Radioaktivitätsmessung verwendet, außerdem zur chemischen Ausbeutebestimmung. Wir bedienten uns der von GLENDENIN und METCALF angegebenen Arbeitsvorschrift, die zufriedenstellende Ergebnisse lieferte [17]. Wir möchten jedoch noch darauf hinweisen, daß zur Vermeidung größerer Jodverluste beim Vertreiben des  $\text{SO}_2$  aus der Lösung vor der  $\text{AgJ}$ -Fällung größte Vorsicht geboten ist. Enthält die Lösung einen Überschuß an  $\text{HNO}_3$ , so erfolgt u.U. eine Oxydation zum elementaren Jod, das in der Hitze aus der Lösung verflüchtigt wird.

#### Ruthenium-Bestimmung

Eine sehr gute und bequeme Abtrennungsmethode für Ruthenium aus Spaltproduktlösungen ist die Ver-

Radioaktivitätsverhältnis  $^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$  bzw.  $^{103}\text{Ru}/^{131}\text{J}$ Abb. 2. Abhängigkeit des  $^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$ - bzw.  $^{103}\text{Ru}/^{131}\text{J}$ -Radioaktivitätsverhältnisses vom  $^{235}\text{U}$ - und  $^{233}\text{U}$ -Gehalt der Uranprobe

flüchtigung des Ru als Tetroxid durch Destillation aus schwefelsaurer Lösung mit  $\text{CrO}_3$ . Durch eine zweimalige Destillation erhält man eine ausgezeichnete Dekontamination von den übrigen Spaltprodukten. Das Verfahren wurde früher für die Abtrennung von Osmium entwickelt [18], es eignet sich aber ebenso gut für eine Ru-Analyse.

Die Analysenlösung wurde dazu in einem Rundkölbchen mit ca. 150 ml halbkonzentrierter  $\text{H}_2\text{SO}_4$  versetzt und an die Destillationsapparatur angeschlossen. Als Absorptionsflüssigkeit für das verflüchtigte  $\text{RuO}_4$  diente 6n-HCl. Nach dem Zufügen von etwa 10 g  $\text{CrO}_3$  zur Analysenlösung wurde das Ru langsam, unter stetigem Durchleiten eines schwachen Luftstroms durch die Apparatur, mit Wasserdampf in die eisgekühlten Absorptionsgefäße überdestilliert. Nach Bedarf wurde dem Destillationskölbchen frische wäßrige  $\text{CrO}_3$ -Lösung zugesetzt. Nach Abdestillieren von ca. 100 ml Flüssigkeit, ist die Abtrennung nahezu quantitativ. Die Lösung mit dem überdestillierten Ruthenium wurde mit wenig Thioharnstoff zur Bildung eines stabilen Komplexes versetzt und nach Zugabe von wenigen ml konz.  $\text{H}_2\text{SO}_4$  bis zum Auftreten weißer  $\text{SO}_3$ -Nebel abgedampft. Dabei wird kein Ru verflüchtigt. Um eine völlige radiochemische Reinheit des Ru zu erzielen, wurde der Rückstand erneut einer Destillation mit  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und  $\text{CrO}_3$  unterworfen. Das aufgefangene Ru-Destillat wurde nun erneut mit Thioharnstoff zur Bildung eines blau gefärbten Komplexes versetzt, der zur spektralphotometrischen chemischen Ausbeutebestimmung herangezogen wurde.

Diese Methode ist bei SANDELL beschrieben [19]. Anschließend wurde die Lösung auf ein Volumen von 10 ml eingedampft und direkt im NaJ-Bohrlochkristall auf die vorhandene  $^{103}\text{Ru}$ - $\gamma$ -Aktivität gemessen.

#### Ergebnisse und Schlußbemerkung

Die nach dem beschriebenen Verfahren gemessenen Radioaktivitäten für Uranproben verschiedener Isotopenzusammensetzung sind für die einzelnen Radionuklide in Tabelle 2 zusammengestellt. Die angegebenen Radioaktivitätswerte sind, einschließlich der Fehler der chemischen Ausbeutebestimmung auf  $\pm 2,5\%$  beim  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{103}\text{Ru}$  bzw.  $\pm 3\%$  beim  $^{131}\text{J}$ , genau. Die Bestimmungsfehler für die beiden Radioaktivitätsverhältnisse  $^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$  und  $^{103}\text{Ru}/^{131}\text{J}$  sind entsprechend größer. Die experimentell aus Mehrfachbestimmungen ermittelte Fehlerbreite beträgt  $\pm 5\%$ .

Die angegebenen Radioaktivitätswerte sind relative Meßwerte; sie sind von den Meßbedingungen abhängig. Radioaktivitätsverhältnisse können je nach der Bestrahlungsdauer der Proben im Reaktor und der Meßanordnung andere Werte annehmen. Für die beschriebene Methode genügen Relativmessungen; die Kenntnis der Absolutwerte ist nicht erforderlich.

In Abb. 2 ist die Abhängigkeit der  $^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$ - bzw.  $^{103}\text{Ru}/^{131}\text{J}$ -Verhältnisse von der  $^{233}\text{U}$ - und  $^{235}\text{U}$ -Isotopenzusammensetzung in graphischer Form dargestellt.

Von den beiden gewählten Spaltnuklidpaaren dürfte das  $^{103}\text{Ru}/^{89}\text{Sr}$ -Verhältnis die besseren Werte liefern, da einmal die Analysengenauigkeit für Sr höher als für Jod ist und zum anderen das Radioaktivitätsverhältnis wegen der größeren Unterschiede in den Spaltausbeuten auch höhere Variationen zeigt.

Durch die Messung der Radioaktivitätsverhältnisse zweier Spaltnuklide erhält man das  $^{233}\text{U}/^{235}\text{U}$ -Verhältnis in einer Uranprobe unabhängig von der Anwesenheit noch anderer Uranisotope. Ist man an der absoluten Isotopen-Zusammensetzung des Uranpräparates interessiert, braucht man nur die jeweils für die verschiedenen Radionuklide gemessenen Radioaktivitätswerte ins Verhältnis zu denjenigen der Standardproben zu setzen, um bei bekannten Urangewichtsmengen den unbekannten Wert zu ermitteln.

Zu beachten ist, daß bei Absolutbestimmungen der Isotopen-Zusammensetzung das veränderliche Molekulargewicht der Uranproben in Abhängigkeit der Isotopenhäufigkeiten in Rechnung gestellt wird.

Das geschilderte radiometrische Bestimmungsverfahren liefert sicherlich keine so präzisen Daten wie das Massenspektrometer. Es zeichnet sich jedoch durch seine Einfachheit aus, da es in jedem radiochemischen Laboratorium durchzuführen ist. Für viele praktische Zwecke dürfte eine Bestimmungsgenauigkeit auf  $\pm 5\%$  vollkommen ausreichend sein.

Für ihre tatkräftige Mithilfe bei den experimentellen Arbeiten bin ich Frau MARIA LACHNIT zu besonderem Dank verpflichtet.

**Literatur.** [1] STRAUSS, S. D.: Nucleonics 24, 46 (1966). — [2] KAUFFMAN, G. F., and C. D. TABOR: Symposium on Nuclear Materials Management, IAEA Wien, 1965, Paper SM 67/34. — [3] CROUTHAMER, C. E., R. HEINRICH, und C. GATROUSIS: Talanta 1, 396 (1958). — [4] IAEA-Report: SGAE-PH/CH-1 (1964). — [5] BOBLETER, O., and I. MUSYL: Radiochim. Acta 3, 57 (1964). — [6] SCHNEIDER, R. A.: Anal. Chem. 34, 522 (1962). — [7] GRINDLER, J. E.: The Radiochemistry of Uranium, NAS-NS-3050, p. 215, U.S. Department of Commerce, Washington (D.C.) 1962. — [8] SEYFANG, A. P., and A. A. SMALES: Analyst 78, 394 (1953). — [9] ROELAND: Proceedings II Conf. Geneva, 1958, vol. 15, Paper 551, p. 440. — [10] BALCARCZYK, L., P. KERATSCHEV u. E. LANZEL: Nukleonik 7, 169 (1965). — [11] FERGUSON, R. L., and G. D. O'KELLEY: ORNL-Report Nr. 3305 (1962). — [12] GARRISON, J. D., and B. W. ROOS: Nuclear Sci. and Eng. 12, 115 (1962). — [13] KATCOFF, S.: Nucleonics 18, (11), 201 (1960). — [14] SANTRY, D. C., and L. YAFFE: Can. J. Chem. 38, 421 (1960). — [15] FARRAR, H., H. R. FICKELAND, and R. H. TOMLINSON: Can. J. Phys. 40, 1017 (1962). — [16] SUNDERMAN, D. N., and C. W. TOWNLEY: The Radiochemistry of Barium, Calcium and Strontium, NAS-NS-3010, p. 71, U.S. Department of Commerce, Washington (D.C.) 1960. — [17] KLEINBERG, J., and G. A. COWAN: The Radiochemistry of Fluorine, Bromine and Iodine, NAS-NS-3005, p. 31, U.S. Department of Commerce, Washington (D.C.) 1960. — [18] MERZ, E.: Untersuchungen über die natürliche Radioaktivität des Lutetiums und des Rheniums und ihre Eignung zur geologischen Datierung. Diss. Univ. Mainz 1957. — [19] SANDELL, E. B.: Colorimetric determination of traces of metals, p. 781–782. New York: Interscience 1959.

Privatdozent Dr. E. MERZ  
Institut für Chemische Technologie  
der Kernforschungsanlage Jülich  
5170 Jülich, Postfach 365